

明細書

電解質組成物およびこれを用いた光電変換素子

本願は、2003年9月8日に出願された特願2003-315955号に対し優先権を主張し、その内容をここに援用する。

技術分野

本発明は、電解質組成物およびこれを用いた光電変換素子に関する。

背景技術

色素増感太陽電池は、スイスのグレッツェルらにより開発されたものであり、光電変換効率が高く、製造コストが安い等の利点をもち、新しいタイプの太陽電池として注目を集めている（例えば、日本国特許2664194号公報、日本国特開2001-160427号公報、日本国特開2001-230434号公報、日本国特開2002-184478号公報を参照）。

色素増感太陽電池の概略構成は、透明な導電性の電極基板の上に、二酸化チタンなどの酸化物半導体微粒子（ナノ粒子）からなり、光増感色素が担持された多孔質膜を有する作用極と、この作用極に対向して設けられた対極とを備え、これら作用極と対極との間に、酸化還元対を含有する電解質が充填されたものである。

この種の色素増感太陽電池は、太陽光などの入射光を吸収した光増感色素により酸化物半導体微粒子が増感され、作用極と対極との間に起電力が生じることにより、光エネルギーを電力に変換する光電変換素子として機能する。

電解質としては、 I^-/I_3^- などの酸化還元対をアセトニトリル等の汎用の有機溶媒に溶解させた電解液を用いることが一般的であり、この他、不揮発性のイオン性液体を用いた構成、液状の電解質を適当なゲル化剤でゲル化させ、擬固体化した構成、p型半導体などの固体半導体を用いた構成などが知られている。

しかしながら、電解液の調製にアセトニトリル等の有機溶媒を用いた場合、該

有機溶媒の揮発により電解液が減量すると、電極間の導電性が確保されずに光電変換特性が低下するおそれがある。このため、特に、屋外等で使用する際に、十分な寿命を確保することが困難である。

電解質として不揮発性のイオン性液体を用いた場合、電解液の揮発は避けることができるが、高粘度であるために電解質内の電荷輸送速度が遅く、揮発性電解液を用いた場合と比較して、出力が低下することが問題となっている。出力電流の改善のため、キャリア濃度を増大させる試みがあるが十分とはいえないのが実情である。また、一般に電圧が低下する点も改善を要する。

発明の開示

本発明は、上記事情に鑑みてなされたものであり、特性の優れた電解液組成物およびこれを用いた光電変換素子を提供することを課題とする。

前記課題を解決するため、本発明は、アニオンとして、ジシアノアミドアニオンを有するイオン性液体を含有することを特徴とする電解質組成物を提供する。前記イオン性液体のカチオンとしては、例えば、四級化された窒素原子を含有するカチオンが挙げられる。

本発明の電解質組成物は、含ハロゲン系酸化還元対を含有することができる。本発明の電解質組成物の好ましい用途としては、例えば、光電変換素子の電解質が例示される。

また、本発明は、上記電解質組成物を電解質とする光電変換素子を提供する。この光電変換素子としては、例えば、色素増感太陽電池が挙げられる。

本発明の電解質組成物は、優れた特性を有するものであり、電解質として種々の用途が期待される。本発明の電解質組成物を光電変換素子の電解質として用いた場合、高い電流特性と電圧特性を同時に達成することができ、良好な光電変換特性を得ることができる。

図面の簡単な説明

図1は、本発明の光電変換素子の一例を示す断面図である。

発明を実施するための最良の形態

以下、図面を参照しつつ、本発明の好適な実施例について説明する。ただし、本発明は以下の各実施例に限定されるものではなく、例えばこれら実施例の構成要素同士を適宜組み合わせてもよい。

以下、最良の形態に基づき、本発明を詳しく説明する。

本発明の電解質組成物は、ジシアノアミドアニオンをアニオンとして有するイオン性液体を含有する。

イオン性液体は、アニオンとしてジシアノアミドアニオンを有する限り、特に限定されるものではないが、室温で液体となる室温溶融塩が用いられる。ジシアノアミドアニオンの対カチオンとしては、例えば、四級化された窒素原子を含有するカチオンが挙げられる。

四級化された窒素原子を含有するカチオン(以下、「四級化窒素原子含有カチオン」という)は、第四級アンモニウム ($N^+R^1R^2R^3R^4$; 式中、 $R^1 \sim R^4$ は、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基などの置換基であり、置換基の水素原子の一部または全部が置換されていてもよい)；イミダゾリウム、ピリジニウム、ピロリジニウム (pyrrolidinium)、ピラゾリジニウム、イソチアゾリジニウム、およびイソオキサゾリジニウム等の複素環含窒素化合物のカチオンが例示される。四級化窒素原子含有カチオンは、四級化された窒素原子や他の環内原子に結合する置換基として、アルキル基、シクロアルキル基、アリール基、アラルキル基などの置換基を有していてもよい。

ジシアノアミドアニオンを有するイオン性液体の具体例としては、1-エチル-3-メチルイミダゾリウム-ジシアノアミド、N-ブチルピリジニウム-ジシアノアミド、N-エチル-N-メチルピロリジニウム-ジシアノアミド、N-ブチル-N-メチルピロリジニウム-ジシアノアミド、N-ブチル-N-メチルピロリジニウム-ジシアノアミド、N-ヘキシル-N-メチルピロリジニウム-ジシアノアミド、N-トリエチルアンモニウム-ジシアノアミド、N-ヘキシル-N, N, N-トリエチルアンモニウム-ジシアノアミド、N-ペンチル-N, N, N-トリエチルアンモニウム-ジシアノアミド、N-ペンチル-N, N, N-トリプチルアンモニウム-ジシアノアミド等が挙げられる。

この種のイオン性液体の合成方法は、ナトリウムジシアノアミド、銀ジシアノアミドなどのジシアノアミド金属塩を用いた四級化窒素原子含有カチオンの塩類のアニオン交換による方法を用いることができる。アニオン交換による合成方法は、例えば、グリーン・ケミストリー誌 (Green Chemistry)、2002年、第4号、444～448頁に記載されている。

本発明の電解質組成物には、必須の成分ではないが、酸化還元対（レドックス対）を添加することができる。酸化還元対は、電解質組成物が色素増感太陽電池などに適用される場合、添加することが好ましい。

酸化還元対としては、特に限定されることはないが、ヨウ化物イオン (I^-)、臭化物イオン (Br^-)、塩化物イオン (Cl^-) などのハロゲン化物イオンと、 Br_3^- 、 I_3^- 、 I_5^- 、 I_7^- 、 Cl_2I^- 、 ClI_2^- 、 Br_2I^- 、 BrI_2^- などのポリハロゲン化物イオンとからなる含ハロゲン系酸化還元対を用いることが好ましい。

含ハロゲン系酸化還元対は、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- などのハロゲン化物イオンに、ハロゲン分子を反応させることによって得ることができる。ハロゲン分子としては、 Cl_2 、 Br_2 、 I_2 などの単体ハロゲン分子および／または ClI 、 BrI 、 $BrCl$ などのハロゲン間化合物（インターハロゲン化合物）を用いることができる。具体的には、ヨウ素／ヨウ化物イオンや、臭素／臭化物イオンを例示することができる。

ハロゲン化物イオンに対するハロゲン分子の比は、特に制限はないが、より好ましくはモル比で0%～100%である。ハロゲン分子の添加は、特に必須ではないが、ポリハロゲン化物イオンが介在すると、ハロゲン化物イオンとポリハロゲン化物イオンとが酸化還元対を形成し、光電変換特性など特性を向上できることから、ハロゲン分子を添加することが好ましい。

ハロゲンイオンの供給源としては、リチウム塩、四級化イミダゾリウム塩、テトラブチルアンモニウム塩などを単独または複合して用いることができる。

本発明の電解質組成物は、適当なゲル化剤を用いて、物理的、化学的にゲル化したものを用いることもできる。

本発明の電解質組成物には、必要に応じて、4-tert-ブチルピリジン、

2-ビニルピリジン、N-ビニル-2-ピロリドンなどの有機窒素化合物；リチウム塩、ナトリウム塩、マグネシウム塩、ヨウ化物塩、チオシアノ酸塩、水などの各種添加物を、電解質組成物の性状や特性を損ねない範囲内で添加することができる。

上記成分から本発明の電解質組成物を製造する方法は特に限定されるものではないが、例えば、まず、イオン性液体に酸化還元対などの添加物を添加して均一に混合する方法がある。

本発明の電解質組成物は、例えば色素増感太陽電池などの光電変換素子に好ましく用いることができる。ジシアノアミドアニオンをアニオンとして有するイオン性液体は、従来のイオン性液体に比較して粘性が低いため、電解質内での電荷輸送速度を向上させるなどの効果が期待できる。また、この電解質組成物を色素増感太陽電池に用いた場合、他のイオン性液体を用いた場合に比較して、高い起電力（開放電圧）が得られる点も大きな特徴である。

この他、光電変換素子以外の分野においても、従来の電解液や電解質に代えて、種々の用途に利用することが考えられる。

次に、上記電解質組成物を用いた光電変換素子の実施の形態例について説明する。図1は、本発明の光電変換素子の一実施の形態として、色素増感太陽電池の概略構成例を示す断面図である。

この色素増感太陽電池1は、透明電極基板2上に、酸化チタンなどの酸化物半導体微粒子からなり、光増感色素が担持された酸化物半導体多孔質膜5を有する作用極6と、この作用極6に対向して設けられた対極8とを備えている。そして、これらの作用極6と対極8との間には、上記電解質組成物からなる電解質層7が形成されている。

透明電極基板2は、ガラス板やプラスチックシートなどの透明基材4の上に、導電材料からなる導電層3を形成したものである。

透明基材4の材料としては、用途上、光透過性の高いものが好ましく、ガラスの他、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレンナフタレート(PEN)、ポリカーボネート(PC)、ポリエーテルスルホン(PES)などの透明プラスチックシート、酸化チタン、アルミナなどのセラミックスの研磨板などを用

いることができる。

導電層3としては、透明電極基板2の光透過率の観点から、スズ添加酸化インジウム(ITO)、酸化スズ(SnO₂)、フッ素添加酸化スズ(FTO)などの透明な酸化物半導体を単独で、もしくは複数種類を複合化して用いることが好ましい。しかしながら、特にこれらに限定されるものではなく、光透過率および導電性の観点で、使用目的に適合する適当な材料を選択して用いればよい。また、酸化物半導体多孔質膜5や電解質層7からの集電効率を向上するため、透明電極基板2の光透過率を著しく損ねない範囲の面積率で、金、銀、白金、アルミニウム、ニッケル、チタンなどからなる金属配線層を併用してもよい。金属配線層を用いる場合、格子状、縞状、櫛状などのパターンとして、透明電極基板2になるべく均一に光が透過するように配設するとよい。

導電層3を形成する方法としては、導電層3の材料に応じた公知の適切な方法を用いればよいが、例えば、ITOなどの酸化物半導体から導電層3を形成する場合、スパッタ法、CVD法、SPD法(スプレー熱分解堆積法)、蒸着法などの薄膜形成法が挙げられる。そして、光透過性と導電性を考慮して、通常、0.05μm～2.0μm程度の膜厚に形成される。

酸化物半導体多孔質膜5は、酸化チタン(TiO₂)、酸化スズ(SnO₂)、酸化タンクステン(WO₃)、酸化亜鉛(ZnO)、酸化ニオブ(Nb₂O₅)などの1種または2種以上を複合させた平均粒径1～1000nmの酸化物半導体微粒子を主成分とし、厚さが0.5～50μm程度の多孔質の薄膜である。

酸化物半導体多孔質膜5を形成する方法としては、例えば、市販の酸化物半導体微粒子を所望の分散媒に分散させた分散液、あるいは、ゾルーゲル法により調整できるコロイド溶液を、必要に応じて所望の添加剤を添加した後、スクリーンプリント法、インクジェットプリント法、ロールコート法、ドクターブレード法、スピンドルコート法、スプレー塗布法など公知の塗布により塗布するほか、コロイド溶液中に電極基板2を浸漬して電気泳動により酸化物半導体微粒子を電極基板2上に付着させる泳動電着法、コロイド溶液や分散液に発泡剤を混合して塗布した後、焼結して多孔質化する方法、ポリマーマイクロビーズを混合して塗布した後、このポリマーマイクロビーズを加熱処理や化学処理により除去して空隙を形成さ

せて多孔質化する方法などを適用することができる。

酸化物半導体多孔質膜5に担持される増感色素は、特に制限されるものではなく、例えば、ビピリジン構造、ターピリジン構造などを含む配位子を有するルテニウム錯体や鉄錯体、ポルフィリン系やフタロシアニン系の金属錯体をはじめ、エオシン、ローダミン、メロシアニン、クマリンなどの有機色素などから、用途や酸化物半導体多孔質膜の材料に応じて適宜選択して用いることができる。

対極8としては、例えば、ガラスなどの非導電性材料からなる基板上に、ITOやFTO等の導電性酸化物半導体からなる薄膜を形成したもの、あるいは、基板上に、金、白金、炭素系材料などの導電性材料を蒸着、塗布などすることにより電極を形成したものを用いることができる。また、ITOやFTO等の導電性酸化物半導体の薄膜上に白金、カーボンなどの層を形成したものとすることもできる。

このような対極8を作製する方法としては、例えば、塩化白金酸塩の塗布後に熱処理することにより、白金層を形成する方法が挙げられる。または、蒸着法やスパッタ法によって電極を基板上に形成する方法でもよい。

作用極6と対極8との間には、アニオンとしてジシアノアミドアニオンを有するイオン性液体を含有する電解質組成物が充填されることにより、電解質層7が形成されている。

本形態の光電変換素子によれば、電解質組成物の主成分が、アニオンとしてジシアノアミドアニオンを有するイオン性液体であるので、従来のイオン性液体と比較して、高い電流特性と電圧特性とを同時に達成して、良好な光電変換特性を実現することができる。

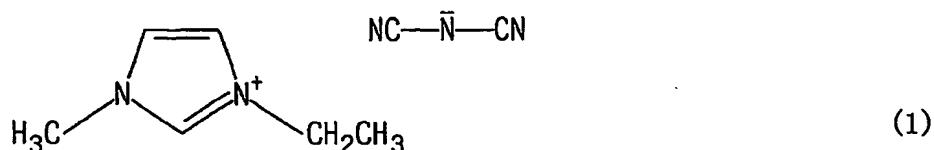
(実施例)

<イオン性液体の合成>

1. 1-エチル-3-メチルイミダゾリウム-ジシアノアミドの合成

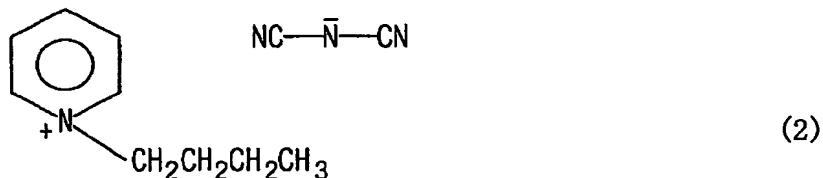
1-メチルイミダゾールと臭化エチルとを常法により反応させ、1-エチル-3-メチルイミダゾリウム-臭化物を得た。これを再結晶により精製したのち、アセトン中にナトリウムジシアノアミドと混合してアニオン交換することにより、下記式1に記載のイオン性液体を合成した。得られた1-エチル-3-メチ

ルイミダゾリウムージシアノアミドは、シリカカラムを用いて精製した上で、電解液の調製に用いた。



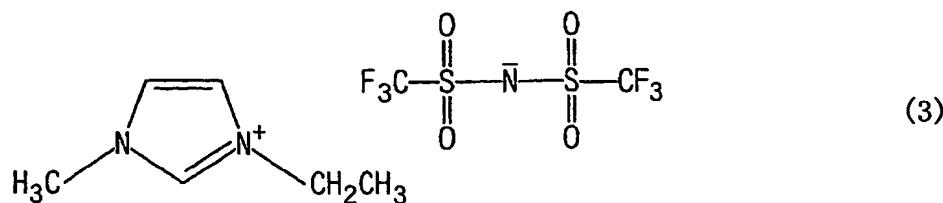
2. 1-ブチルピリジニウムージシアノアミドの合成

ピリジンと臭化ブチルとを常法により反応させ、1-ブチルピリジニウム臭化物を得た。これを再結晶により精製したのち、アセトン中にナトリウムジシアノアミドと混合してアニオン交換することにより、下記式2に記載のイオン性液体を合成した。得られた1-ブチルピリジニウムージシアノアミドは、シリカカラムを用いて精製した上で、電解液の調製に用いた。



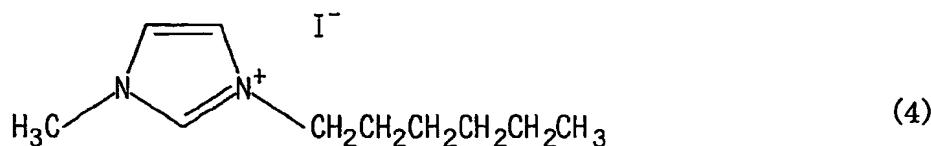
3. 1-エチル-3-メチルイミダゾリウムービストリフルオロメチルスルホニルイミドの合成

1-メチルイミダゾールと臭化エチルとを常法により反応させ、1-エチル-3-メチルイミダゾリウムー臭化物を得た。これを再結晶により精製したのち、水中にてビストリフルオロメチルスルホニルイミドーリチウム塩と混合してアニオン交換することにより、下記式3に記載のイオン性液体を合成した。得られた1-エチル-3-メチルイミダゾリウムービストリフルオロメチルスルホニルイミドは、純水にて十分に洗浄して精製した上で、電解液の調製に用いた。



4. 1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムヨウ化物；

下記式4に記載の1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムヨウ化物は、市販品を購入して用いた。



<電解質組成物の調製>

表1に記載の配合により、イオン性液体、酸化還元対、および必要に応じてその他の添加剤を混合することにより、番号1～7に係る電解質組成物を調製した。

表1において、用いた略号の意味は、以下のとおりである。

EMIm-DCA : 1-エチル-3-メチルイミダゾリウムジシアノアミド

BPy-DCA : 1-ブチルピリジニウムジシアノアミド

EMIm-TFSI : 1-エチル-3-メチルイミダゾリウムビストリフルオロメチルスルホニルイミド

HMI m-I : 1-ヘキシル-3-メチルイミダゾリウムヨウ化物

EMIm-I : 1-エチル-3-メチルイミダゾリウムヨウ化物

TBP : 4-tert-ブチルピリジン

LiI : ヨウ化リチウム

また、番号2の電解質組成物において、ゲル化剤としては、フッ化ビニリデン-六フッ化プロピレン共重合体を用いた。

表 1

番号	イオン性液体	酸化還元対	添加剤
1	EMIm-DCA	EMIm-I (1.5M)+I ₂ (0.15M)	TBP+LiI
2	EMIm-DCA	EMIm-I (1.5M)+I ₂ (0.15M)	TBP+LiI+ゲル化剤
3	BPy-DCA	EMIm-I (1M)+I ₂ (0.1M)	なし
4	BPy-DCA	EMIm-I (1.5M)+I ₂ (0.15M)	TBP+LiI
5	EMIm-TFSI	EMIm-I (1.5M)+I ₂ (0.15M)	TBP+LiI
6	EMIm-TFSI	EMIm-I (1.5M)+I ₂ (0.15M)	なし
7	HMIIm-I	HMIIm-I+I ₂ (10:1 で混合)	TBP+LiI

<試験セルの作製>

FTO膜付きガラス基板上に、粒子径13～20nmの酸化チタンナノ粒子を含有するスラリーを塗布し、乾燥後、450°Cで1時間焼成して酸化物半導体多孔質膜を形成した。これを色素液中に一晩浸漬して、酸化物半導体多孔質膜に色素を担持させ、光電極とした。色素としては、ルテニウムビピリジン錯体（N3色素）を用いた。

上記色素担持電極を作用極として用い、この作用極と対向する対極としては、FTO膜付きガラス基板上に白金層をスパッタ法によって形成したものを用いた。

作用極と対極とを重ね合わせ、これら両電極間に上記電解質組成物を充填して、試験セルとなる色素増感太陽電池を作製した。

<試験セルの評価>

エアマス（AM）1.5、放射照度100mW/cm²の光照射条件により、試験セルの光電変換特性を評価した。評価結果を表2に示す。表2において、本発明の電解質組成物を用いた実施例の試験セルは、番号1～4であり、従来の電解質組成物を用いた比較例の試験セルは、番号5～7である。

表 2

番号	光電変換効率 (%)
1	5.5
2	5.4
3	5.5
4	6.1
5	4.5
6	3.2
7	4.3

表 2 に示すように、実施例の試験セル（番号 1～4）では、比較例の試験セル（番号 5～7）と比較して、高い変換効率が得られた。

以上の比較結果から、本発明によれば、従来に比べて、出力特性の優れた光電変換素子を得ることができることが明らかになった。

産業上の利用の可能性

本発明の電解質組成物は、優れた特性を有するものであるので、光電変換素子の電解液の他、種々の用途への利用が期待できる。

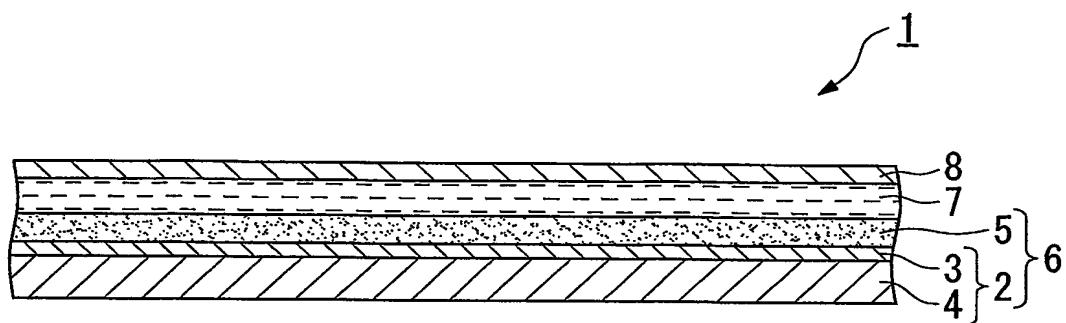
本発明の光電変換素子は、光電変換効率に優れている。従って、かかる光電変換素子を用いた色素増感太陽電池などの太陽電池は、極めて有効である。

請求の範囲

1. アニオンとして、ジシアノアミドアニオンを有するイオン性液体を含有する電解質組成物。
2. 前記イオン性液体は、カチオンとして、四級化された窒素原子を含有するものである請求項 1 に記載の電解質組成物。
3. 含ハロゲン系酸化還元対を含有する請求項 1 に記載の電解質組成物。
4. 光電変換素子の電解質として用いられる請求項 1 に記載の電解質組成物。
5. 請求項 1 に記載の電解質組成物を電解質として含有する光電変換素子。
6. 色素増感太陽電池である請求項 5 に記載の光電変換素子。

1/1

図 1



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/013253

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ H01M14/00, H01L31/04, H01B1/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01M14/00, H01L31/04, H01B1/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
 Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	Douglas R. MacFarlane et al., Low viscosity ionic liquids based on organic salts of the dicyanamide anion, Chem.Commun., 2001, No. 16, 21 August, 2001 (21.08.01), pages 1430 to 1431	1-6
P,X	JP 2004-227909 A (Nippon Shokubai Co., Ltd.), 12 August, 2004 (12.08.04), Claims 1, 2; throughout Detailed Explanation of the Invention (Family: none)	1-6
P,X	JP 2004-241378 A (Nippon Shokubai Co., Ltd.), 26 August, 2004 (26.08.04), Claims 1 to 3; throughout Detailed Explanation of the Invention (Family: none)	1-6

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
16 November, 2004 (16.11.04)Date of mailing of the international search report
30 November, 2004 (30.11.04)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int.Cl? H01M 14/00, H01L 31/04, H01B 1/12

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int.Cl? H01M 14/00, H01L 31/04, H01B 1/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2004年
日本国登録実用新案公報	1994-2004年
日本国実用新案登録公報	1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	Douglas R. MacFarlane, et. al, Low viscosity ionic liquids based on organic salts of the dicyanamide anion, Chem. Commun., 2001, No. 16, 2001.08.21, p. 1430-1431	1-6
P, X	JP 2004-227909 A, (日本触媒株式会社), 2004.08.12 請求項1, 2、発明の詳細な説明全般 (ファミリーなし)	1-6
P, X	JP 2004-241378 A, (日本触媒株式会社), 2004.08.26 請求項1-3、発明の詳細な説明全般 (ファミリーなし)	1-6

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

16.11.2004

国際調査報告の発送日

30.11.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

植前充司

4X 9445

電話番号 03-3581-1101 内線 3477